

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-135135

(43)Date of publication of application : 21.05.1999

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
C08L 27/12  
H01B 1/12  
H01M 4/94  
H01M 8/10  
H01M 12/08

(21)Application number : 09-297514

(71)Applicant : ASAHI GLASS CO LTD

(22)Date of filing : 29.10.1997

(72)Inventor : YOSHITAKE MASARU  
YOSHIDA NAOKI  
KOTSUKIYOU YASUHIRO  
SHIMODAIRA TETSUJI

## (54) ELECTROCHEMICAL ELEMENT

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To restrain drying of an ion exchange membrane and prevent short-circuit of an electrode by containing non-conductive pillar particles in an ion exchange membrane consisting of a fluorocarbon polymer having a phosphonic acid and allocating a positive electrode, in contact with one side face thereof and negative electrode in contact with the other side face.

SOLUTION: On both side faces of an ion-exchange membrane, consisting of a fluorocarbon polymer having a phosphonic acid group, a positive electrode and a negative electrode such as a gas dispersion electrodes are disposed respectively, and a slide poly electrolyte type fuel cell is obtained. In this electrochemical element, in the above ion-exchange membrane, non-conductive, hydrophilic, acid resistant pillar particles of 10 to 90% in particle size of thickness of the ion exchange membrane, and preferably about 30 to 70% is made to be contained in 5 to 50% by volume, preferably 10 to 40% uniformly. As the pillar particles, oxide such as silica, a composite oxide such as spinel, and glass such as silicate are preferred. Thereby, even if an ion exchange membrane is thinned, penetration of an electrode can be prevented.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-135135

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月21日

(51) IntCl. <sup>8</sup>	識別記号	F I	
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	P
C 0 8 L 27/12		C 0 8 L 27/12	
H 0 1 B 1/12		H 0 1 B 1/12	Z
H 0 1 M 4/94		H 0 1 M 4/94	
8/10		8/10	
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 6 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号	特願平9-297514	(71) 出願人	000000044 旭硝子株式会社 東京都千代田区丸の内 2 丁目 1 番 2 号
(22) 出願日	平成 9 年 (1997) 10 月 29 日	(72) 発明者	吉武 優 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社内
		(72) 発明者	吉田 直樹 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社内
		(72) 発明者	国狭 康弘 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株式会社内
		(74) 代理人	弁理士 泉名 謙治 (外 1 名) 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気化学素子

(57) 【要約】

【課題】イオン交換膜の膜厚を薄くしても電極が膜を貫通して短絡を生ずることがなく、イオン交換膜の含水率が外界の湿度の変化の影響を受けにくく、安定して高出力が得られる電気化学素子を提供する。

【解決手段】非導電性のピラー粒子を含有するホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜を用いる。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】ホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜の一側面に陽極を、他側面に陰極を接触して配置した電気化学素子であって、上記イオン交換膜が非導電性のピラー粒子を含有することを特徴とする電気化学素子。

【請求項2】イオン交換膜中に非導電性のピラー粒子を5～50体積%含有し、非導電性のピラー粒子の粒径がイオン交換膜の厚さの10～90%である請求項1記載の電気化学素子。

【請求項3】陽極および陰極がガス拡散電極であり、かつ電気化学素子が燃料電池である請求項1または2記載の電気化学素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子電解質型燃料電池、空気-亜鉛電池等の電気化学素子に関する。

## 【0002】

【従来の技術】水素を燃料とする固体高分子型燃料電池は、代表的なものとして固体電解質としてフッ素樹脂系のイオン交換膜を用いるものが従来より知られており、常温からの作動が可能で、高出力密度が得られ、原理的に水のみが生成するという特徴を有する。このため、近年のエネルギー、地球環境問題への社会的要請の高まりとともに、大きな期待が寄せられている。また、空気-亜鉛電池などにおいては、セパレータとしてイオン交換樹脂を成膜したものをを用いたものがすでに実用化されている。

【0003】固体高分子型燃料電池に用いられる固体電解質は、通常、厚さ50～200 $\mu$ mのプロトン伝導性イオン交換膜が用いられ、特にスルホン酸基を有するパーフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜が基本特性に優れ広く検討されている。

【0004】このイオン交換膜を用いた固体高分子型燃料電池では、イオン交換膜の導電性を保持するために加湿したガスを供給しながら運転する。そのため、常圧で作動温度を100℃以上にすると水の蒸気圧が急激に高くなり、イオン交換膜が乾燥し膜抵抗が増大するとともに、反応ガスの分圧が低下し電池性能が低下する。そのため、常圧では100℃未満の温度条件下で運転されている。

【0005】この種の燃料電池は、電解質膜の両面にガス拡散性の電極層を形成し、それぞれの電極に燃料である水素と酸化剤となる酸素または空気を供給することにより発電を行うものである。出力特性のさらなる向上を目的として、電極触媒活性の向上、ガス拡散電極の特性改善、抵抗損の低減等の検討がなされている。抵抗損としては導体抵抗損、接触抵抗損、膜抵抗損がある。

## 【0006】

【発明が解決しようとする課題】上記のようにイオン交換膜を用いた固体高分子型燃料電池では、加湿したガスを供給して運転する。一方、空気極においては反応により水が生成し、空気極内で凝縮する（いわゆるフラッディング）と、反応物である酸素が十分に供給できなくなり電池性能の低下を引き起こすため、空気極から反応生成物である水をすばやく除去する必要がある。このように固体高分子型燃料電池で電池出力を得るためには、系の加湿と、系からの水の除去という相反する操作をバランスよく行わなければならない。

【0007】また、イオン交換膜の抵抗は、膜の含水率が高いほど、膜中のイオン交換基濃度が高いほど、膜の厚さが薄いほど、小さくなる傾向にある。膜の含水率は供給するガスの湿度等の運転条件により変化し、また入手しうるイオン交換膜のイオン交換基濃度はおのずから一定の制限があるため、比較的容易な方法として膜厚の薄いイオン交換膜を用いて膜抵抗損を低減することが期待されている。

【0008】しかし、イオン交換膜厚を薄くすると、膜自体の強度の低下や、電極-膜接合体の作製時や燃料電池の使用中に電極がイオン交換膜を貫通することにより生ずる電極の短絡の問題がある。

【0009】空気-亜鉛電池等のセパレータは従来のセロファン等のフィルムの場合、厚さは100～200 $\mu$ m程度であり、イオン交換膜を用いる場合は、セロファン等の従来のセパレータフィルムに比較して薄膜化できるが、この場合も上記と同様の問題がある。

【0010】膜抵抗の低減のためにイオン交換膜を薄膜化した際の膜の寸法安定性および機械的強度を改善する方法として、多孔性のポリテトラフルオロエチレン（PTFE）のフィルムにパーフルオロ系イオン交換樹脂を含浸させ、補強したイオン交換膜が提案されている（特公平5-75835、特公平6-10277等）が、必ずしも充分ではない。

【0011】本発明は上記課題を解決すべくなされたものであり、特にイオン交換膜の乾燥による膜抵抗増加の抑制および電極がイオン交換膜を貫通することにより生ずる電極の短絡を防止することを目的とする。

## 【0012】

【課題を解決するための手段】本発明は、ホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜の一側面に陽極を、他側面に陰極を接触して配置した電気化学素子であって、上記イオン交換膜が非導電性のピラー粒子を含有することを特徴とする電気化学素子である。

【0013】本発明の電気化学素子に用いられるイオン交換膜の厚さは、特に限定されないが、100 $\mu$ m以下、特に5～50 $\mu$ mであるときは、特に電極の短絡防止の効果が大きく好ましい。

【0014】本明細書中において、ピラー粒子とは、イ

オン交換膜が軟化した場合にもその存在によりイオン交換膜の厚みを保持し、いわゆるピラー (pillar) として機能する粒子をいう。本発明におけるピラー粒子としては、電極の短絡を防止する目的から非導電性であり、親水性であり、さらにはパーフルオロホスホン酸のような強酸の存在下でも耐食性を有するものが好ましい。

【0015】具体的には、シリカ、チタニア、アルミナ等の酸化物、スピネル、ペロブスカイト等の複合酸化物、ケイ酸塩ガラス等のガラス、炭化ケイ素、炭化チタン等の炭化物、窒化ケイ素、窒化ホウ素等の窒化物、ナイロン、PTFE等のフッ素樹脂等のプラスチック等が好ましい。なかでも、上記酸化物、複合酸化物またはガラスは特に好ましい。

【0016】ピラー粒子の形状はいずれでもよいが、均一な形状を得やすい点で球状のものが好ましい。ピラー粒子の大きさは、イオン交換膜の厚さにより異なるが、イオン交換膜の厚さの10～90%、特に30～70%であることが好ましい。上記範囲より小さい場合は十分な電極の短絡防止効果が得られず、一方、大きい場合はイオン交換膜を貫通するボア等の欠陥が生じやすくなるため好ましくない。なお、ピラー粒子の粒径は、具体的には0.5～50μm、特に1～30μmであるのが好ましい。

【0017】上記のイオン交換膜は、ピラー粒子を5～50体積%、特に10～40体積%の割合で含有するのが好ましい。含有割合が上記範囲より小さい場合は膜中におけるピラー粒子の存在量が小さいためにピラー粒子の添加効果が低下して十分な電極の短絡防止効果が得られず、一方、大きい場合はイオン交換樹脂の含有比率が小さくなるため、イオン交換膜の機械的強度の低下や膜抵抗の増加が起こり好ましくない。また、ピラー粒子は膜全体に均一に含有されるのが好ましい。

【0018】本発明におけるイオン交換膜は、ホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体よりなる。上記フルオロカーボン重合体としては、 $\text{CF}_2 = \text{CF} - (\text{OCF}_2\text{CFX})_m - \text{O}_p - (\text{CF}_2)_n - \text{A}$  (式中、 $m$ は0～8の整数、 $n$ は0～12の整数、 $p$ は0または1、 $X$ はフッ素原子またはトリフルオロメチル基、 $A$ はホスホン酸基 ( $-\text{PO}_3\text{H}_2$ ) またはその前駆体官能基を示す。) で表されるフルオロビニル化合物と、 $\text{CF}_2 = \text{CF}_2$  との共重合体が好ましい。

【0019】上記フルオロビニル化合物の好ましい例としては、以下の化合物が挙げられる。なお、 $R$ および $R'$ はアルキル基を表し、 $R$ と $R'$ は同一のアルキル基、異なるアルキル基のいずれでもよい。上記アルキル基としては、炭素数1～3であるものが好ましい。また、 $q$ および $r$ は1～8の整数、 $s$ は0～8の整数、 $t$ は1～5の整数である。

【0020】

【化1】 $\text{CF}_2 = \text{CFO}(\text{CF}_2)_q - \text{PO}_3\text{RR}'$ 、  
 $\text{CF}_2 = \text{CFOCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)\text{O}(\text{CF}_2)_r - \text{PO}_3\text{RR}'$ 、  
 $\text{CF}_2 = \text{CF}(\text{CF}_2)_s - \text{PO}_3\text{RR}'$ 、  
 $\text{CF}_2 = \text{CF}(\text{OCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3))_t - (\text{CF}_2)_2 - \text{PO}_3\text{RR}'$ 。

【0021】なお、上記フルオロカーボン共重合体は、ヘキサフルオロプロピレン、クロロトリフルオロエチレン等のパーフルオロオレフィン、またはパーフルオロ (アルキルビニルエーテル) 等の第三成分を含む共重合体であってもよい。

【0022】上記イオン交換膜は、フィブリル状、繊維状、または不織布状のフルオロカーボン重合体で補強することもできる。ピラー粒子を含有するイオン交換膜を製造する方法としては、種々の方法が採用できる。例えば、上記ホスホン酸型官能基を有するフルオロカーボン重合体とピラー粒子の混合物を加熱押出成形してフィルム状の成形体を得た後、無機酸の水溶液等でホスホン酸型官能基を加水分解する方法が挙げられる。

【0023】また別の方法としては、上記ホスホン酸型官能基を有するフルオロカーボン重合体の溶液または分散液にピラー粒子を分散させた分散液から溶媒を蒸発させてフィルム状の成形体を得た後、無機酸の水溶液等でホスホン酸型官能基を加水分解する方法が挙げられる。

【0024】さらに別の方法としては、上記ホスホン酸型官能基を有するフルオロカーボン重合体を無機酸の水溶液等で処理し、ホスホン酸型官能基を加水分解して得られたホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体を、溶媒に溶かした溶液にピラー粒子を分散させた分散液から溶媒を蒸発させてフィルム状の成形体を得る方法が挙げられる。

【0025】上記のようにして得られたイオン交換膜は膜内全体にほぼ均一にピラー粒子を含有している。しかし、本発明においてピラー粒子は必ずしも膜内全体に均一に存在する必要はなく、膜の厚さ方向に垂直な方向に沿ってピラー粒子を層状に存在せしめた、いわゆるピラー粒子含有層として存在してもよい。このようなイオン交換膜の例としては、片側にピラー粒子含有層を有する膜、ピラー粒子を含有しないイオン交換膜2枚でピラー粒子含有層を挟んだ3層構造の複層膜、ピラー粒子を含有するイオン交換膜とピラー粒子を含有しないイオン交換膜との複層膜等がある。

【0026】このような複層膜は、ピラー粒子を含有するイオン交換膜とピラー粒子を含有しないイオン交換膜をそれぞれ別々にフィルム状に成形し、好ましくは120～230℃、0.5～30kg/cm<sup>2</sup>にてホットプレス法等により密着、積層させることにより製造できる。

【0027】また、ピラー粒子を含有しないイオン交換膜の片面に、塗布法、スプレー法または印刷法等により

ピラー粒子を含有するイオン交換膜層を形成した後、必要ならばさらにもう一層のピラー粒子を含有しないイオン交換膜をピラー粒子含有層を挟むように積層させ、ホットプレス法等により密着させることにより製造できる。

【0028】本発明の電気化学素子が、例えば固体高分子電解質燃料電池である場合は、通常の既知の方法にしたがってイオン交換膜の表面にガス拡散電極が接合され、次いでカーボンペーパー等の集電体を取り付けられる。この電極および集電体を表面に有するイオン交換膜は、燃料ガス（水素ガス等）または酸化剤ガス（酸素ガスまたは空気等）の通路となる溝が形成された一対の導電性の室枠に挟み込まれることにより、燃料電池として組み立てられる。

【0029】上記固体高分子電解質型燃料電池で使用されるガス拡散電極は、特に限定されない。例えば、白金担持カーボンブラック粉末をPTFEなどの親水性樹脂結着材で保持させた多孔質シートが使用でき、該多孔質シートはホスホン酸基を有するパーフルオロカーボン重合体やその重合体で被覆された微粒子を含んでもよい。この多孔質シートはガス拡散電極としてホットプレス法等により固体高分子型電解質である上記イオン交換膜に接合される。

【0030】また、ガス拡散電極の別の製造方法としては、イオン交換膜または集電体を形成するカーボンペーパー等の両面または片面に、塗布法、スプレー法または印刷法等により、白金担持カーボンと、ホスホン酸基またはスルホン酸基を有するパーフルオロカーボン重合体との混合物からなるガス拡散電極の層を形成し、これらを好ましくは120～350℃、2～100kg/cm<sup>2</sup>にてホットプレスする方法があり、これにより表面にガス拡散電極層を有するイオン交換膜または集電体が製造できる。ガス拡散電極層を有する集電体は、さらに該ガス拡散電極層をイオン交換膜側に向けて、イオン交換膜に接合される。

【0031】また、本発明の電気化学素子が空気-亜鉛電池等である場合は、従来より使用されているセパレータを本発明のイオン交換膜に置き換えることにより使用できる。例えば、空気-亜鉛電池の場合は、ステンレス鋼製の陰極（正極）容器の中に、1）空気孔から触媒層へ酸素を拡散させるセルロース製の拡散紙、2）多孔質PTFE等からなる親水膜、3）活性炭、カーボンブラック等の比表面積の大きい炭素材料または該炭素材料にマンガン、コバルト等の触媒成分が担持されたものからなる陰極触媒層、4）本発明のイオン交換膜よりなるセパレータの順に収容されることにより構成される。一方、ステンレス製の陽極（負極）容器の中には、亜鉛粉末、ゲル化剤および電解液からなる亜鉛陽極が収容される。そして、上記陰極容器および陽極容器をガasketを介して封口することにより、空気-亜鉛電池が形成さ

れる。

#### 【0032】

【作用】本発明においては、ホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜（以下、ホスホン酸型膜と称する）を用いることにより、燃料電池のイオン交換膜における乾燥防止のための水分管理が容易になる。この理由は明確ではないが、以下のように考えられる。

【0033】従来より汎用されているスルホン酸基を有するフルオロカーボン重合体からなるイオン交換膜（以下、スルホン酸型膜と称する）のイオン交換基が1価であるのに対して、ホスホン酸型膜のイオン交換基は2価である。そのためホスホン酸型膜ではイオン交換容量が高いものを容易に得られる。イオン交換膜においては、イオン交換容量が高いものほど含水率も高くなる。したがって、イオン交換膜が乾燥しやすい条件下にあっても、ホスホン酸型膜は、スルホン酸型膜よりも高い含水率を保つことができ、膜抵抗の上昇を抑制できる。すなわち、加温ガスの供給が不十分になっても膜抵抗の変化が小さいため、安定した出力電圧が得られると考えられる。

【0034】また本発明では、膜抵抗損の低減のためにイオン交換膜の膜厚を薄くしても電極間の短絡が発生せず良好な電気化学素子が得られるが、その機構は以下のように考えられる。

【0035】ピラー粒子を含有しないパーフルオロ系イオン交換膜は、温度や含水率の上昇により軟化するため、ホットプレス等の電極-膜接合体の成形圧力や、燃料電池室枠や電池の陽極および陰極容器による締め付け圧力により膜厚が減少する。またイオン交換膜表面に形成したガス拡散電極やイオン交換膜の両側に接する電池の陽極および陰極が膜に食い込み、最終的には電極の短絡が生じる。

【0036】これに対し、本発明におけるイオン交換膜は、非導電性のピラー粒子を含有するため、ホスホン酸基を有するフルオロカーボン重合体が軟化しても該ピラー粒子の粒径以下につぶれることはなく、電極の短絡を防止できる。また、本発明におけるホスホン酸型膜は、スルホン酸型膜より軟化しにくいいため、これによっても電極の短絡防止に効果的である。よって、電極の短絡による不具合を起こすことなくイオン交換膜の厚さを薄くでき、その結果膜抵抗損が低減され、電気化学素子の高出力化が達成される。

#### 【0037】

【実施例】以下に本発明を実施例（例1、例3）および比較例（例2、例4、例5）により詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されない。

#### 【0038】[例1]

$\text{CF}_2 = \text{CF}_2$  と  $\text{CF}_2 = \text{CFOCF}_2$   $\text{CF}(\text{CF}_3)$   
 $\text{O}(\text{CF}_2)_2\text{PO}_3$

$(\text{CH}_3)_2$  との共重合体からなるイオン交換容量2.1ミリ当量/g乾燥樹脂の共重合体粒子を、1Nの塩酸と1Nの酢酸との混合水溶液中で加水分解を行い、水洗後、1N塩酸中に浸漬した。次にこの粒子を水洗し、60℃で1時間乾燥し、共重合体粒子を得た。

【0039】上記共重合体粒子と、粒径5 $\mu\text{m}$ のチタニア粒子の混合物を用いて溶融キャスト法により厚さ8 $\mu\text{m}$ の燃料電池用イオン交換膜を得た。このイオン交換膜は膜全体に均一に30体積%のチタニアを含有していた。

【0040】このイオン交換膜の両面に、Ptを担持したカーボンブラック60重量部とPTFE40重量部とからなる厚さ約150 $\mu\text{m}$ のガス拡散電極(Pt担持量0.5mg/cm<sup>2</sup>)をホットプレス法により接合した。

【0041】この電極-膜接合体を電池性能測定用セルに組み込んで、セル温度80℃で、陽極および陰極にそれぞれ加湿した水素と空気を供給し、電流密度0.5A/cm<sup>2</sup>で放電試験を行った。端子電圧は0.69Vであった。

【0042】[例2] 例1においてチタニア粒子を混合しなかったこと以外は、例1と同様にして電極-膜接合体を得た。この電極-膜接合体を電池性能測定用セルに組み込んで、例1と同様に放電試験を行ったが、開放起電力がきわめて低く、電圧を取り出すことができなかった。電極-膜接合体を調べたところ、接合体内部での電極の短絡が発生していた。

【0043】[例3]  
 $\text{CF}_2=\text{CF}_2$  と  $\text{CF}_2=\text{CFOCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)$   
 $\text{O}(\text{CF}_2)_2\text{PO}_3$   
 $(\text{CH}_3)_2$  と  $\text{CF}_2=\text{CFOCF}_3$  との共重合体からなるイオン交換容量2.0ミリ当量/g乾燥樹脂の共重合体80体積%と、平均粒径10 $\mu\text{m}$ のシリカ粒子20体積%の混合物を230℃で押出製膜し、厚さ20 $\mu\text{m}$ のフィルムを得た。

【0044】上記フィルムを、1Nの塩酸と1Nの酢酸との混合水溶液中で加水分解を行い、水洗後、1N塩酸中に浸漬した。次いで水洗し、その四辺を専用治具で拘束した後、60℃で1時間乾燥し、燃料電池用イオン交換膜を得た。このイオン交換膜の両面に、例1と同様にしてガス拡散電極を接合した。

【0045】この電極-膜接合体を電池性能測定用セルに組み込んで、セル温度60℃で、アノードおよびカソードにそれぞれ乾燥した水素と空気を供給し、無加湿で

電流密度0.5A/cm<sup>2</sup>にて連続放電試験を行った。初期の端子電圧は0.65Vであり、1000時間後の端子電圧の低下は約5%であった。

【0046】[例4]

$\text{CF}_2=\text{CF}_2$  と  $\text{CF}_2=\text{CFOCF}_2\text{CF}(\text{CF}_3)$   
 $\text{O}(\text{CF}_2)_2\text{SO}_2$   
Fとの共重合体からなるイオン交換容量1.0ミリ当量/g乾燥樹脂の共重合体80体積%と、平均粒径10 $\mu\text{m}$ のシリカ粒子20体積%の混合物を220℃で押出製膜し、厚さ20 $\mu\text{m}$ のフィルムを得た。上記フィルムを、ジメチルスルホキシド30重量%と水酸化カリウム15重量%の混合水溶液中で加水分解を行った後、例3と同様に処理した。

【0047】次いで例3と同様にして電極-膜接合体を得た後、この電極-膜接合体を電池性能測定用セルに組み込み、例3と同じ条件で連続放電試験を行った。初期の端子電圧は0.66Vであり例3よりもわずかに高い電圧を示したが、1000時間後の端子電圧の低下は約10%であった。

【0048】[例5] 例3において、シリカ粒子を使用しなかった以外は例3と同様にして、厚さ20 $\mu\text{m}$ のイオン交換膜を得た。このイオン交換膜を例3と同様にして加水分解および後処理を行った。

【0049】次いで例3と同様にして電極-膜接合体を得た後、この電極-膜接合体を電池性能測定用セルに組み込み、例3と同じ条件で連続放電試験を行った。初期の端子電圧は0.65Vであったが、約800時間経過した後に端子電圧が急激に低下し、0.5A/cm<sup>2</sup>での放電が不可能となった。電極-膜接合体を調べたところ、接合体内部での電極の短絡が発生していた。

【0050】

【発明の効果】本発明の電気化学素子は、イオン交換膜が軟化し、膜内を電極が貫通することにより発生する短絡を効果的に防止できるので、イオン交換膜の厚みを小さくできる。また、膜中の含水率を高い状態に保持でき、膜の伝導度を向上させうるため、膜厚が薄いことと相まって膜抵抗損をきわめて小さくでき、電気化学素子の一層の高出力化を達成できる。

【0051】さらに、イオン交換膜の含水率が高く保たれることにより、膜の乾燥が防止でき、固体高分子電解質型燃料電池においては、イオン交換膜の含水率が外界の湿度の変化の影響を受けにくく、燃料電池の運転操作が容易になる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
H01M 12/08

識別記号

FI  
H01M 12/08

K

(72)発明者 下平 哲司  
神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地  
旭硝子株式会社内